

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平6-84526

(43) 公開日 平成6年(1994)3月25日

(51) Int.Cl.<sup>5</sup>

識別記号

庁内整理番号

F I

技術表示箇所

H 0 1 M 8/02

B 8821-4K

審査請求 未請求 請求項の数8(全15頁)

(21) 出願番号 特願平4-236046

(22) 出願日 平成4年(1992)9月3日

(71) 出願人 000006013

三菱電機株式会社

東京都千代田区丸の内二丁目2番3号

(72) 発明者 谷口 哲也

神戸市兵庫区和田崎町1丁目1番2号 三

菱電機株式会社神戸製作所内

(72) 発明者 松本 正昭

神戸市兵庫区和田崎町1丁目1番2号 三

菱電機株式会社神戸製作所内

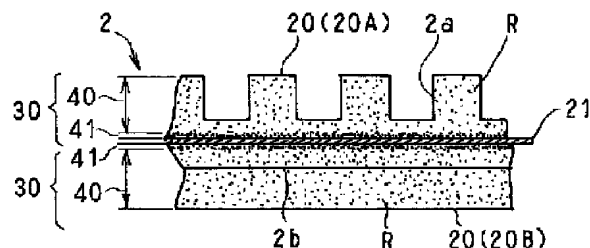
(74) 代理人 弁理士 曾我 道照 (外6名)

(54) 【発明の名称】 燃料電池用リブ付きセパレータおよびその製造方法

(57) 【要約】

【目的】 電気抵抗や熱抵抗を小さく抑えることができるとともに、積層コストの低減を図ることができる燃料電池用リブ付きセパレータを提供する。

【構成】 その材料を、一定厚さの多孔質炭素層40の一面側に薄くてシール性のある緻密質炭素層41を有した一体形の傾斜炭素板30、30の2枚から構成し、そのガス流路2a、2b用のリブRを、2枚の傾斜炭素板30、30の各多孔質炭素層40の他面側に形成する。この場合、リブRを形成した一对の傾斜炭素板30、30の緻密質炭素層41側どうしを重ね合わせるとリブ付きセパレータ2が形成されるが、接触面が一箇所しかないため、電気抵抗等を小さく抑えることができ、かつ積層コストの低減をも図ることができる。



30：傾斜炭素材

40：多孔質炭素層

41：緻密質炭素層

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 電解質を保持するマトリックスの両側に電極を有した単電池と交互に積層され、その両面にガス流路用のリブが形成されている燃料電池用リブ付きセパレータにおいて、その材料を、一定厚さの多孔質炭素層の一面側に薄くてシール性のある緻密質炭素層を有した一体形の傾斜炭素板2枚から構成し、そのガス流路用のリブを、前記2枚の多孔質炭素板の各多孔質炭素層の他面側に形成していることを特徴とする燃料電池用リブ付きセパレータ。

【請求項2】 電解質を保持するマトリックスの両側に電極を有した単電池と交互に積層され、その両面にガス流路用のリブが形成されている燃料電池用リブ付きセパレータの製造方法において、一面側にガス流路用のリブを有する一定厚さの多孔質炭素板を製作する第1の工程と、前記多孔質炭素板の他面側に熱硬化性樹脂の薄膜を形成する第2の工程と、前記薄膜が形成された多孔質炭素板を加熱処理して、前記薄膜をシール性のある緻密質炭素層に変える第3の工程とを有することを特徴とする燃料電池用リブ付きセパレータの製造方法。

【請求項3】 電解質を保持するマトリックスの両側に電極を有した単電池と交互に積層され、その両面にガス流路用のリブが形成されている燃料電池用リブ付きセパレータにおいて、その材料を、一定厚さの一对の多孔質炭素層の間に薄くてシール性のある緻密質炭素層を有した一体形の傾斜炭素板から構成し、そのガス流路用のリブを、前記傾斜炭素板の多孔質炭素層の両外面側に形成していることを特徴とする燃料電池用リブ付きセパレータ。

【請求項4】 電解質を保持するマトリックスの両側に電極を有した単電池と交互に積層され、その両面にガス流路用のリブが形成されている燃料電池用リブ付きセパレータの製造方法において、一面側にガス流路用のリブを有する一定厚さの多孔質炭素板を製作する第1の工程と、前記多孔質炭素板の他面側に熱硬化性樹脂の薄膜を形成する第2の工程と、前記薄膜が形成された一对の多孔質炭素板の前記薄膜側どうしを重ね合わせ、加熱処理して、これ等を一体化するとともに、前記薄膜をシール性のある緻密質炭素層に変える第3の工程とを有することを特徴とする燃料電池用リブ付きセパレータの製造方法。

【請求項5】 電解質を保持するマトリックスの両側に電極を有した単電池と交互に積層され、その両面にガス流路用のリブが形成されている燃料電池用リブ付きセパレータにおいて、その材料を、一定厚さの多孔質炭素層の一面側に薄くてシール性のある緻密質炭素層を有した一体形の傾斜炭素板2枚から構成し、そのガス流量用のリブを、前記緻密質炭素層側どうしを接合して一体化した前記2枚の傾斜炭素板の前記多孔質炭素層の両外面側に形成していることを特徴とする燃料電池用リブ付きセ

パレータ。

【請求項6】 電解質を保持するマトリックスの両側に電極を有した単電池と交互に積層され、その両面にガス流路用のリブが形成されている燃料電池用リブ付きセパレータの製造方法において、一面側にガス流路用のリブを有する一定厚さの多孔質炭素板を製作する第1の工程と、前記多孔質炭素板の他面側に熱硬化性樹脂の薄膜を形成する第2の工程と、前記薄膜が形成された多孔質炭素板を加熱処理して、前記薄膜をシール性のある緻密質炭素層に変える第3の工程と、前記緻密質炭素層が形成された一对の多孔質炭素板の前記緻密質炭素層側どうしを接合して一体化する第4の工程とを有することを特徴とする燃料電池用リブ付きセパレータ。

【請求項7】 電解質を保持するマトリックスの両側に電極を有した単電池と交互に積層され、その両面にガス流路用のリブが形成されている燃料電池用リブ付きセパレータにおいて、その材料を、一定厚さの多孔質炭素層の一面側に薄くてシール性のある緻密質炭素層を有した一体形の傾斜炭素板2枚と、薄い強度のある炭素板とから構成し、そのガス流量用リブを、前記炭素板を前記2枚の傾斜炭素板の緻密質炭素層側どうしで挟みつけて合体接合したものの多孔質炭素層側両外面に形成していることを特徴とする燃料電池用リブ付きセパレータ。

【請求項8】 電解質を保持するマトリックスの両側に電極を有した単電池と交互に積層され、その両面にガス流路用のリブが形成されている燃料電池用リブ付きセパレータの製造方法において、一面側にガス流路用のリブを有する一定厚さの多孔質炭素板を製作する第1の工程と、前記多孔質炭素板の他面側に熱硬化性樹脂の薄膜を形成する第2の工程と、前記薄膜が形成された多孔質炭素板を加熱処理して、前記薄膜をシール性のある緻密質炭素層に変える第3の工程と、薄い強度のある炭素板を前記緻密質炭素層が形成された一对の多孔質炭素板の緻密質炭素層側どうしで挟みつけて接合し、これ等を一体化する第4の工程とを有することを特徴とする燃料電池用リブ付きセパレータの製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】 この発明は、積層構造のリン酸形燃料電池に用いられるリブ付きセパレータおよびその製造方法に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】 リン酸を電解質とした積層式のリン酸形燃料電池は知られている（特開昭63-318075号公報、特開昭63-24561号公報、特開昭60-230366号公報、特開昭60-20471号公報、特開昭57-19981号公報等）。例えば、図13はこのような従来の積層式リン酸形燃料電池の積層体の分解斜視図であり、図において、1は電解質となるリン酸を含浸させたマトリックス1aの両面を電極としての空気

電極1bと燃料電極1cでみつけた単電池、2は一面側にガス流路として水平横溝状の空気流路2aを有し、他面側にガス流路として水平縦溝状の燃料ガス流路2bを有した両溝形のリブ付きセパレータ、3は単電池1とリブ付きセパレータ2とを交互に複数積層した積層体である。

【0003】図14は上記リブ付きセパレータ2の拡大断面図であり、図において、10はガス透過性を有する多孔質炭素板、11は気液シール性を有し、一对の多孔質炭素板10、10で挟みつけられている緻密質炭素板、Rは空気流路2a用としておよび燃料ガス流路2b用として多孔質炭素板10の外側面に形成されているリブ、R1は多孔質炭素板10の両側面からの気液のリークを防止するためのシール処理がなされたシールリブである。ここで緻密質炭素板11の板厚は通常0.4～1.0mmであり、多孔質炭素板10の板厚は通常1.0～2.0mmであるため、リブ付きセパレータ2全体の厚みは2.4～5.0mmとなる。また、リブRの高さは通常0.5～1.5mm程度であるため、多孔質炭素板10の溝部分の残肉厚さは0.5mm程度となる。

【0004】つぎにこの積層式リン酸形燃料電池の動作を説明する。発電にあたり積層体3の側面に設けられたガスヘッダ(図示していない)を介してリブ付きセパレータ2の空気流路2aに空気が供給され、燃料ガス流路2bに水素リッチな燃料ガスが供給される。そして、この空気および燃料ガスは、直接またはリブ付きセパレータ2の多孔質炭素板10中を拡散しながらそれぞれ単電池1の空気電極1bと燃料電極1cとに達し、それぞれの触媒のもとで反応を起こす。その際、燃料電極1cで発生した水素イオンはマトリックス1a中を移動して空気電極1bまで達するとともに、燃料電極1cで発生した電子は導電性のリブ付きセパレータ2を通して隣の単電池1の空気電極1bまで達し、この空気電極1bで水を生成させる。そして、このときに単電池1ごとに起電力が発生し、積層体3全体では単電池1の起電力に単電池1の数を乗じただけの起電力が発生する。

【0005】この場合、マトリックス1aは電解質であるリン酸の作用により、水素イオンのみを通し電子は通さないという働きを有しているが、このマトリックス1a中のリン酸は生成された水の蒸発時等に一部電池系外へ搬出され不足ぎみとなる。このため、リブ付きセパレータ2の多孔質炭素板10の空隙中には予めリン酸が貯蔵されており、マトリックス1a側でリン酸が不足してくると、このリン酸はリブ付きセパレータ2の多孔質炭素板10側から絶えず補給されている。また、発電時には起電ロスにより単電池1等には熱が発生し電池系内の温度を高めようとするが、この熱はリブ付きセパレータ2を通して、数単電池1ごとに配置された冷却装置(図示していない)に伝達され、そこから外部に回収される。

【0006】積層式リン酸形燃料電池は上記のように動作するため、リブ付きセパレータ2には導電性および熱伝導度性が高いとともに、耐熱性および耐リン酸腐食性を備えていることが要求される。そして、リブ付きセパレータ2の緻密質炭素板11には高い気液シール性と高強度で薄肉化が可能ながことが要求され、特にリブ付きセパレータ2の多孔質炭素板10にはガス透過性およびリン酸貯蔵性がよいことが要求される。このため、従来より緻密質炭素板11には、通称グラッシーカーボンと呼ばれる非晶質カーボン材料(例えば昭和電工株式会社製SGシリーズや神戸製鋼株式会社製GCRシリーズがこれに該当する)が0.4～0.8mm程度の厚さで用いられ、多孔質炭素板10には、ピッチ系またはPAN系、あるいはその他の繊維と熱硬化性樹脂とを混合・成形した後に焼成したカーボン材料(例えば呉羽化学工業株式会社製KESシリーズや東レ株式会社製TGPシリーズがこれに該当する)が1～2mmの厚さで用いられる。

【0007】さて、多孔質炭素板10と緻密質炭素板11とから構成されるリブ付きセパレータ2の使用方法を分類すると、多孔質炭素板10と緻密質炭素板11とを独立部材として使用し、組立時に個々に積層していく方法と、2枚の多孔質炭素板10、10と一枚の緻密質炭素板11とを予め接合または一体化したものを積層していく方法がある。

【0008】ここで、多孔質炭素板10と緻密質炭素板11とを接合または一体化する方法には、

A:それぞれ焼成が終了したものに接合剤を塗布し、その後これ等を加圧・加熱処理して貼り合わせる接合方法と、

B:それぞれ焼成が終了したものに熱硬化性樹脂を塗布して貼り合わせた後、これ等を加圧・焼成する一体化方法と、

C:一方または双方が未焼成(いわゆるグリーン状態をいう)のものどうしを加圧して貼り合わせた後、これ等を焼成する一体化方法とがある。

しかし、実際には多孔質炭素板10と緻密質炭素板11間には線膨張率や弾性定数および収縮度に違いがあるため、AおよびBの一体化方法は困難であり、Cの接合方法が多く採用されている。

【0009】上記Cの方法では接合剤として耐リン酸性を兼ね備えた材料という観点から、フッ素樹脂系またはこれと炭素材料の混合材等が使用される。そして、この接合剤を緻密質炭素板11の表面に薄く塗布して乾燥した後、この緻密質炭素板11を2枚の多孔質炭素板10、10で挟んで加圧し、これ等を300～400℃まで昇温して、接合体としてのリブ付きセパレータ2が製作される。なお、片溝形のリブ付きセパレータは1枚の多孔質炭素板10と1枚の緻密質炭素板11とを同様にして接合すればよい。

## 【0010】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、リブ付きセパレータ2を別々に独立した2枚の多孔質炭素板10と1枚の緻密質炭素板11とで構成する場合は、前もってこれ等を接合する必要がなく製作コストが安いというメリットはあるが、その分積層回数が増えるため、積層コストの上昇を招いてしまうという課題がある。またこの場合、溝加工した板剛性の低い多孔質炭素板10を単独で積層しなければならないため、ハンドリング時にこの多孔質炭素板10に破損が生じやすいという課題がある。このため、多孔質炭素板10の積層を熟練工の手作業により行なわなければならない、その分組立コストの上昇を招いてしまうという課題もある。なお、多孔質炭素板10の板剛性の向上を図るには厚肉化や高密度化が考えられるが、このことは電池のコンパクト化に反するとともに、多孔質炭素板10に要求される導電性・熱伝導性の向上やガス透過性の向上に反し妥当でない。

【0011】また、多孔質炭素板10や緻密質炭素板11を別々に積層していく場合には、積層体3の面圧分布やクリープ変形による面圧緩和に対応して、局所的に接触部分に大きな電気抵抗や熱抵抗が生じやすく、電池寿命を短くしてしまうという課題がある。

【0012】これに対して、リブ付きセパレータ2を2枚の多孔質炭素板10と1枚の緻密質炭素板11とを一体的に接合して構成する場合は、上記の場合に対して、積層体3の組み立てにあたり積層回数が大幅に減少するというメリットと、前もってこれ等の接合作業をする必要があり、製作コストの上昇を招いてしまうというデメリットは当然あるが、特にこの場合、接合剤としてフッ素系樹脂を使用するため、接合状態が良好でない部分(多孔質炭素板10と緻密質炭素板11とが完全に密接されていない部分)では、その導電性および熱伝導性が低下してしまうという課題がある。また、1個の接合体全体としては電気抵抗や熱抵抗が許容値以下となっても、実際には接合面内でのばらつきは大きいため、このばらつきが単電池1内での電流の流れ方や温度分布にも影響を与え、最終的には単電池1の特性や電池の発電効率に悪影響を与えてしまうという課題がある。

【0013】さらに、接合にあたり、フッ素系樹脂を溶融可能な温度まで加熱する必要があるが、加熱時の板面内での温度分布がそのまま接合強度に影響を与えるため、必要温度より高温で加熱してしまう傾向がある。このためフッ素系樹脂の一部が蒸発して多孔質炭素板10内に拡散し、炭素繊維表面を覆ってしまい、多孔質炭素板10のリン酸貯蔵性が悪くなってしまうという課題がある。

【0014】また、リブ付きセパレータ2を接合して一体形とする場合でも、しない場合でも、このリブ付きセパレータ2では緻密質炭素板11の両面について接触または接合箇所が生じ、この部分において電気抵抗および

熱抵抗を大きく増大させてしまうという課題がある。そしてこのリブ付きセパレータ2の接触または接合箇所は積層体3全体では莫大な数となるため、これ等が燃料電池の発電効率や積層体3の冷却に悪影響を及ぼすという課題がある。

【0015】この発明は、上記のような課題を解決するためになされたものであり、要求される性能・品質を満たし、かつ電気抵抗や熱抵抗を小さく抑えることができるとともに、積層コストの低減を図ることができる燃料電池用のリブ付きセパレータを提供することを目的とする。また、この発明は、上記燃料電池用のリブ付きセパレータを歩留まりよく低コストで製造できる燃料電池用のリブ付きセパレータの製造方法を提供することを目的とする。

## 【0016】

【課題を解決するための手段】この発明の第1の発明は、電解質を保持するマトリックスの両側に電極を有した単電池と交互に積層され、その両面にガス流路用のリブが形成されている燃料電池用リブ付きセパレータにおいて、その材料を、一定厚さの多孔質炭素層の一面側に薄くてシール性のある緻密質炭素層を有した一体形の傾斜炭素板2枚から構成し、そのガス流路用のリブを、2枚の多孔質炭素板の各多孔質炭素層の他面側に形成していることである。

【0017】この発明の第2の発明は、電解質を保持するマトリックスの両側に電極を有した単電池と交互に積層され、その両面にガス流路用のリブが形成されている燃料電池用リブ付きセパレータの製造方法において、一面側にガス流路用のリブを有する一定厚さの多孔質炭素板を製作する第1の工程と、多孔質炭素板の他面側に熱硬化性樹脂の薄膜を形成する第2の工程と、薄膜が形成された多孔質炭素板を加熱処理して、薄膜をシール性のある緻密質炭素層に変える第3の工程とを有することである。

【0018】この発明の第3の発明は、電解質を保持するマトリックスの両側に電極を有した単電池と交互に積層され、その両面にガス流路用のリブが形成されている燃料電池用リブ付きセパレータにおいて、その材料を、一定厚さの一对の多孔質炭素層の間に薄くてシール性のある緻密質炭素層を有した一体形の傾斜炭素板から構成し、そのガス流路用のリブを、傾斜炭素板の多孔質炭素層の両外面側に形成していることである。

【0019】この発明の第4の発明は、電解質を保持するマトリックスの両側に電極を有した単電池と交互に積層され、その両面にガス流路用のリブが形成されている燃料電池用リブ付きセパレータの製造方法において、一面側にガス流路用のリブを有する一定厚さの多孔質炭素板を製作する第1の工程と、多孔質炭素板の他面側に熱硬化性樹脂の薄膜を形成する第2の工程と、薄膜が形成された一对の多孔質炭素板の薄膜側どうしを重ね合わ

せ、加熱処理して、これ等を一体化するとともに、薄膜をシール性のある緻密質炭素層に変える第3の工程とを有することである。

【0020】この発明の第5の発明は、電解質を保持するマトリックスの両側に電極を有した単電池と交互に積層され、その両面にガス流路用のリブが形成されている燃料電池用リブ付きセパレータにおいて、その材料を、一定厚さの多孔質炭素層の一面側に薄くてシール性のある緻密質炭素層を有した一体形の傾斜炭素板2枚から構成し、そのガス流量用のリブを、緻密質炭素層側どうしを接合して一体化した2枚の傾斜炭素板の多孔質炭素層の両外面側に形成していることである。

【0021】この発明の第6の発明は、電解質を保持するマトリックスの両側に電極を有した単電池と交互に積層され、その両面にガス流路用のリブが形成されている燃料電池用リブ付きセパレータの製造方法において、一面側にガス流路用のリブを有する一定厚さの多孔質炭素板を製作する第1の工程と、多孔質炭素板の他面側に熱硬化性樹脂の薄膜を形成する第2の工程と、薄膜が形成された多孔質炭素板を加熱処理して、薄膜をシール性のある緻密質炭素層に変える第3の工程と、緻密質炭素層が形成された一対の多孔質炭素板の緻密質炭素層側どうしを接合して一体化する第4の工程とを有することである。

【0022】この発明の第7の発明は、電解質を保持するマトリックスの両側に電極を有した単電池と交互に積層され、その両面にガス流路用のリブが形成されている燃料電池用リブ付きセパレータにおいて、その材料を、一定厚さの多孔質炭素層の一面側に薄くてシール性のある緻密質炭素層を有した一体形の傾斜炭素板2枚と、薄い強度のある炭素板とから構成し、そのガス流量用リブを、炭素板を2枚の傾斜炭素板の緻密質炭素層側どうしで挟みつけて合体接合したものの多孔質炭素層側両外面に形成していることである。

【0023】この発明の第8の発明は、電解質を保持するマトリックスの両側に電極を有した単電池と交互に積層され、その両面にガス流路用のリブが形成されている燃料電池用リブ付きセパレータの製造方法において、一面側にガス流路用のリブを有する一定厚さの多孔質炭素板を製作する第1の工程と、多孔質炭素板の他面側に熱硬化性樹脂の薄膜を形成する第2の工程と、薄膜が形成された多孔質炭素板を加熱処理して、薄膜をシール性のある緻密質炭素層に変える第3の工程と、薄い強度のある炭素板を緻密質炭素層が形成された一対の多孔質炭素板の緻密質炭素層側どうしで挟みつけて接合し、これ等を一体化する第4の工程とを有することである。

【0024】

【作用】この発明の第1の発明では、多孔質炭素層側にガス流路用リブが形成された傾斜炭素板（以下ハーフセパレータという）を2枚重ね合わせることににより、リブ

付きセパレータが得られる。すなわち、このハーフセパレータが多孔質炭素層の一面側に薄くてシール性のある緻密質炭素層を有する一体形の傾斜炭素板で構成されているため、2つのハーフセパレータの互いの緻密質炭素層側を重ね合わせることににより、リブ付きセパレータが得られる。またリブ付きセパレータは2枚のハーフセパレータにより形成されるため、接触箇所が一箇所しかなく電気抵抗や熱抵抗を小さく抑えることができるとともに、単電池とともに積層体を形成する場合でも、その積層作業は容易となる。さらに、ハーフセパレータ20は緻密質炭素層を有しているため、単体強度の向上が図れ、ハンドリング時の破損の低減が図られる。

【0025】この発明の第2の発明では、第1の工程で一面側にガス流路用のリブを有した一定厚さの多孔質炭素板を製作し、第2の工程でこの多孔質炭素板の他面側に熱硬化性樹脂の薄膜を形成する。そして第3の工程で薄膜が形成された多孔質炭素板を加熱処理してこの薄膜をシール性のある緻密質炭素層に変える。すなわち、これ等の工程により、第1の発明に係るハーフセパレータが製造される。これ等の工程では多孔質炭素板の一面側に薄い緻密質炭素層を割れなく形成できる。

【0026】この発明の第3の発明では、傾斜炭素板の両側に有する多孔質炭素層の外面側にガス流路用リブを形成することにより、リブ付きセパレータを形成している。この場合の傾斜炭素板は一定厚さの一対の多孔質炭素層間に薄くてシール性のある緻密質炭素層を一体的に有したものであるため、その両面にガス流路用リブを形成すれば、リブ付きセパレータとなる。このリブ付きセパレータは一体形のものであるため、積層時に接触箇所が生じず、第1の発明のリブ付きセパレータより電気抵抗や熱抵抗を下げるができるとともに、積層体を形成する場合の積層作業もさらに容易となる。またハンドリング時の破損もさらに低減することができる。

【0027】この発明の第4の発明では、第1の工程と第2の工程は第2の発明のそれと同一であるが、第3の工程で、薄膜が形成された一対の多孔質炭素板の前記薄膜側どうしを重ね合わせ、加熱処理して、これらを一体化するとともに、前記薄膜をシール性のある緻密質炭素層に変えている。すなわち、これらの工程により、第3の発明に係るリブ付きセパレータ2が製造される。これらの工程では一対の多孔質炭素板の間に薄い緻密質炭素層を割れなく形成できる。

【0028】この発明の第5の発明では、リブ付きセパレータを第1の発明に係る一対のハーフセパレータの緻密質炭素層側を接合して一体的に構成した場合であり、第1の発明のリブ付きセパレータの場合より、積層体を形成する場合の積層作業が容易となり、かつハンドリング時の破損もさらに低減する。

【0029】この発明の第6の発明では、第1の工程から第3の工程までは第2の発明のそれと同一であり、第

4の工程で、一対のハーフセパレータの緻密質炭素層側を接合して接合形のリップ付きセパレータが得られる。すなわち、これらの工程により第5の発明に係るリップ付きセパレータが製造される。

【0030】この発明の第7の発明では、第1の発明に係る一対のハーフセパレータの緻密質炭素層側間に、薄くて強度のある炭素板を挟みつけて接合し、3者を一体的に合体させることにより、リップ付きセパレータを形成した場合であり、第5の発明のリップ付きセパレータの場合より、その強度を上げてハンドリング時の破損のさら

なる防止が図られている。

【0031】この発明の第8の発明では、第1の工程から第3の工程までは第2の発明のそれと同一であり、第4の工程で、一対のハーフセパレータの緻密質炭素層側に薄くて強度のある炭素板を挟みつけて接合し、接合形のリップ付きセパレータが得られる。すなわち、これらの工程により第7の発明に係るリップ付きセパレータが製造される。

【0032】

【実施例】以下、この発明の実施例を図について説明する。

実施例1. この発明の第1発明に係る燃料電池用リップ付きセパレータの一実施例を図1乃至図3を参照して説明する。図1は積層式リン酸形燃料電池の積層体の部分的斜視図、図2はリップ付きセパレータの部分的断面図、図3は傾斜炭素板の断面図である。なお、図13で示される従来の積層式リン酸形燃料電池の積層体と同一または相当部分には同一符号を付してその説明を省略する。

【0033】図において、20は一面側にリップRが形成されたハーフセパレータ（片溝形リップ付きセパレータ）であり、20Aは一面側に空気流路2a用のリップRが形成された空気電極用ハーフセパレータ、20Bは一面側に空気流路2a用のリップRと直交する向きに燃料ガス流路2b用のリップRが形成された燃料ガス電極用ハーフセパレータである。21は空気電極用ハーフセパレータ20Aと燃料ガス電極用ハーフセパレータ20Bとを重ね合わせてリップ付きセパレータ2を形成する場合に、その間に塗布される導電性の黒鉛ペーストである。

【0034】ハーフセパレータ20は、図3で示されるように、その材料が所定厚さの通気性を有した多孔質炭素層40の一面側に、100～200 $\mu$ mの薄い気液シール性を有する緻密質炭素層41を有した例えば厚さ1.5mmの一体形の傾斜炭素板30から構成されており、そのリップRが多孔質炭素層40側の面に高さ1mmで形成されている。なお、この場合その残肉厚さは0.5mmとなるため、リップRの谷部が緻密質炭素層41までくぐり込むことはない。そして、2つのハーフセパレータ20A、20Bの緻密質炭素層41側面どうしを黒鉛ペースト21を介して重ね合わせることににより厚さ3mmのリップ付きセパレータ2が形成される。なお、ハーフ

セパレータ20の両側のリップRはガスシール処理がなされたシールリップR1となっている。

【0035】つぎにこの傾斜炭素板30から構成されるハーフセパレータ20A、20Bを2枚合わせて形成されるリップ付きセパレータ2Aの動作を説明する。ハーフセパレータ20は多孔質炭素層40と緻密質炭素層41からなる傾斜炭素板30から構成されているため、その性質上、従来のリップ付きセパレータ2を構成する多孔質炭素板10および緻密質炭素板11の性能・品質をすべて有している。したがって、この空気電極用ハーフセパレータ20Aと燃料ガス電極用ハーフセパレータ20Bとを黒鉛ペースト21を介して重ね合わせて形成されるリップ付きセパレータ2は従来のリップ付きセパレータ2と同一機能を有しており、その発電時の動作は従来のリップ付きセパレータ2と同一である。

【0036】いっぽう、従来のリップ付きセパレータ2は2枚の多孔質炭素板10、10と1枚の緻密質炭素板11の3部品から構成され、その接触又は接合箇所が2箇所となっているのに対し、この実施例のリップ付きセパレータ2は2つのハーフセパレータ20A、20Bから構成され、その接触箇所が1箇所であるため、その電気抵抗および熱抵抗は著しく低減され、これらの値は従来のリップ付きセパレータ2の値の約1/2以下になっていることが実験により確かめられた。また、接触箇所の減少にともない接触箇所に起因する種々のトラブルを減少させることができる。

【0037】また、2枚の多孔質炭素板10、10と1枚の緻密質炭素板11とが別々に独立して構成されている従来のリップ付きセパレータ2に対して、この実施例1のリップ付きセパレータ2は、2つのハーフセパレータ20A、20Bで構成されるため、積層体3の組み立てに当たりその積層コストの低減を図ることができるとともに、ハーフセパレータ20の曲げ強度は、緻密質炭素層41を有する分、従来の多孔質炭素板10の2倍以上となっているため、ハンドリング時における部品の破損も大幅に減少させることができる。したがって、熟練工以外の者による組み立ても可能となる。さらに、本実施例のリップ付きセパレータ2では上記従来のリップ付きセパレータ2に比べ、積層時における接触部分が少なくなる分、積層体3の面圧分布やクリープ変形による面圧緩和に対応して接触部分に局所的に大きな電気抵抗や熱抵抗が生じにくくなり、それだけ電池寿命を長くすることができる。

【0038】また、2枚の多孔質炭素板10、10と1枚の緻密質炭素板11とが接合され合体して構成されている従来のリップ付きセパレータ2に対して、本実施例のリップ付きセパレータ2では、接合箇所がないため接合状態が良好でない部分が生じることはなく、かつリップ付きセパレータ2内で電気抵抗や熱抵抗に大きなばらつきが生じることもない。さらに、この実施例1のリップ付きセ

パレータ2では、接着箇所がないため接合剤（フッ素系樹脂）が多孔質炭素層40内に拡散し、この多孔質炭素層40のリン酸貯蔵性を悪くしてしまうこともない。

【0039】実施例2. 図4はこの発明の第2の発明に係る燃料電池用リブ付きセパレータの製造方法の一実施例を示す図である。実施例1では2つのハーフセパレータ20A, 20Bを重ね合わせてリブ付きセパレータ2を構成しているが、この実施例2はこのハーフセパレータ20の製造方法に関するものである。

【0040】この製造方法は一面側にガス流路用のリブRを有する一定厚さの多孔質炭素板を製作する第1の工程A1と、前記多孔質炭素板の他面側に熱硬化性樹脂の薄膜を形成する第2の工程A2と、前記薄膜が形成された多孔質炭素板を加熱処理して前記薄膜をシール性のある緻密質炭素層41に変える第3の工程A3とから構成されている。

【0041】第1の工程A1は従来から知られている一面側にガス流路用リブRを有する多孔質炭素板を製作する工程である（例えばその方法は特開昭59-68170号公報に詳述されている）。この工程では、例えば短炭素繊維、フェノール樹脂バインダーおよび有機粒状物質を混合した後、これを加熱・加圧して一定厚さの成形品とし、その後この成形品を2000℃で焼成した後、できた多孔質炭素材（これは例えば呉羽化学工業株式会社製のKES-400と同等品となる）を所定サイズに加工し、さらにリブ加工をすることにより、一面側にガス流路用リブを有する多孔質炭素板が製作される。なお、リブRを含む形状加工は成形品の段階で行なってもよい。

【0042】第2の工程A2は熱硬化性樹脂（例えば日清紡株式会社製のポリカルボジイミド樹脂）の容液を平滑なガラス板上に展開して溶媒を除去し、熱硬化性樹脂の薄膜を得た後、この薄膜を前記第1の工程A1でできた多孔質炭素板のリブRを有さない側の面に展開して、これを乾燥させるものである。第3の工程A3はその一面側に薄膜が展開・乾燥された第2の工程A2の多孔質炭素板をチッ素雰囲気中で室温から600℃まで徐々に昇温し、その後直ちに放冷するものである。このことにより薄膜は焼成されて多孔質炭素板の一面側に緻密質炭素層となつて一体的に付着する。そして両端部のリブRをシール処理してシールリブR1とすれば、その板厚が1.5mmのハーフセパレータ20が完成する。

【0043】この場合この薄膜から形成される緻密質炭素層の厚さは100~200μmと薄いため、多孔質炭素板の多孔質部分の空隙容積の減少も少ないとともに、この緻密質炭素層のガスシール性能は、その値が $1.0 \times 10^{-6}$  (N・cc/min/cm<sup>2</sup>) [N<sub>2</sub> ガス、差圧0.2Kg/cm<sup>2</sup>、室温] 以下であり、非常に高いため、この緻密質炭素層の板厚方向の気液シール性能には問題は生じない。なお、ポリカルボジイミド樹脂から

薄い緻密質炭素材を形成する方法は特開平2-152167号公報に詳述されている。

【0044】以上の第1、第2、第3の工程A1, A2, A3によって、多孔質炭素板が多孔質炭素層40となり熱硬化性樹脂の薄膜が緻密質炭素層41となった傾斜炭素板30が製造されるとともに、この傾斜炭素板30の多孔質炭素層40側にガス流路用のリブRが形成された実施例1のハーフセパレータ20と同じハーフセパレータ20が歩留まりよく低コストで製造される。なお、この場合、空気電極用ハーフセパレータ20Aと燃料ガス電極用ハーフセパレータ20Bとは上記工程により別々に製造される。

【0045】ここで、緻密質炭素材を製造するにあたり、特に焼成時の収縮率が大きく、かつその緻密性を確保するには板厚を一定厚さ(0.4~1.0mm)まで厚肉化しなければならなかったため、緻密質炭素層を第3の工程A3のような方法で焼成済みの多孔質炭素材(1.5mm)の一侧に形成するのは、割れの発生により、困難であった。いっぽう、例えばポリカルボジイミド樹脂は非常に薄肉(200μm以下)に成形できるとともに、その焼成時の収縮率が小さく、かつその焼成温度が600℃と比較的低いため、第3の工程A3により割れを生じることなく緻密質炭素層が形成できると考えられる。

【0046】なお、この実施例2では熱硬化性樹脂として日清紡株式会社製のポリカルボジイミド樹脂を使用しているが、熱硬化性樹脂はこれに限らず薄い緻密質炭素層を焼成済みの多孔質炭素板の一侧に割れなく形成できるものであれば他のものでもよいのは勿論である。

【0047】実施例3. この発明の第3発明に係る燃料電池用リブ付きセパレータの一実施例を図5乃至図7を参照して説明する。図5は積層式リン酸形燃料電池の積層体の部分的斜視図、図6はリブ付きセパレータの部分的断面図、図7は傾斜炭素板の断面図である。なお、実施例1の積層式リン酸形燃料電池の積層体と同一または相当部分には同一符号を付しその説明を省略する。

【0048】この実施例3のリブ付きセパレータ2は一体形のものであり、その材料が、図7で示されるように、所定厚さの通気性を有した2つの多孔質炭素層40, 40間に200~400μmの薄い気液シール性を有する緻密質炭素層42を有した例えば厚さ3.0mmの一体形の傾斜炭素板31から構成されている。そして、高さ1mmの複数のリブRがこの傾斜炭素板31の両外面、すなわち、多孔質炭素層40, 40の各外面に形成されており、この傾斜炭素板31の一方の面に空気流路2a、他方の面に燃料ガス流路2bが形成されているとともに、両端のリブRはガスシール処理がなされたシールリブR1となっている。

【0049】したがって、この傾斜炭素板31から構成される一体形のリブ付きセパレータ2も従来のリブ付き

セパレータ2と同一の性能・品質を有するとともに、同一の機能を有している。またこのリブ付きセパレータ2は1個の単体から構成されているため、その内部に接触箇所がなく、この部分における電気抵抗や熱抵抗の増大がないため、その電気抵抗や熱抵抗は従来のリブ付きセパレータ2の1/10以下になっている。さらに、実施例1のリブ付きセパレータ2は接触箇所がないため、この接触箇所起因した他の種々のトラブルが生じることもない。

【0050】また、この実施例3のリブ付きセパレータ2は1個の単体から構成されているため、実施例1のリブ付きセパレータ2に比べその積層コストの低減を図ることができるとともに、黒鉛ペースト21も不要であり、その分製作コストの低減をも図ることができる。さらに、実施例3のリブ付きセパレータ2の気液シール性、曲げ強度、多孔質部分の空隙容積は実施例1のリブ付きセパレータ2と同等またはそれ以上の性能を有していることが評価テストにて確認されている。

【0051】実施例4。図8はこの発明の第4の発明に係る燃料電池用リブ付きセパレータの製造方法の一実施例を示す図である。この実施例4は実施例3の一体形のリブ付きセパレータ2の製造方法に関するものである。

【0052】この製造方法は一面側にガス流路用のリブRを有する一定厚さの多孔質炭素板を製作する第1の工程B1と、前記多孔質炭素板の他面側に熱硬化性樹脂の薄膜を形成する第2の工程B2と、前記薄膜が形成された一対の多孔質炭素板の前記薄膜側どうしを重ね合わせ、加熱処理して、これらを一体化するとともに、前記薄膜をシール性のある緻密質炭素層に変える第3の工程B3とから構成されている。

【0053】第1の工程B1と第2の工程B2は実施例2の第1の工程A1と第2の工程A2とそれぞれ同一であるため、その説明を省略する。第3の工程B3では、その一面側に薄膜が展開・乾燥された一対の第2の工程B2で形成された多孔質炭素板をその薄膜どうしを合わせるようにして重ね合わせた後、これらをチッ素雰囲気中で室温から600℃まで徐々に昇温し、その後直ちに放冷する。このことにより薄膜は焼成されて多孔質炭素板の一面側に緻密質炭素層となつて一体的に付着するとともに、緻密質炭素層どうしが合体する。そして、この一体化した炭素板の所定リブRをシール処理してシールリブR1とすれば、その板厚が3.0mmのリブ付きセパレータ2が完成する。

【0054】以上の第1、第2および第3の工程B1、B2、B3によって、2つの多孔質炭素板が一対の多孔質炭素層40、40となり、2つの熱硬化性樹脂の薄膜が緻密質炭素層42となつた傾斜炭素板31が製造されるとともに、この傾斜炭素板31の一対の多孔質炭素層40、40の外面側にガス流路用のリブRが形成された実施例3のリブ付きセパレータ2と同じリブ付きセパ

レータ2が歩留りよく低コストで製造される。なお、この場合、傾斜炭素板31の一方の面側のリブRの向きと他方の面側のリブRの向きは直交しており、傾斜炭素板31の一方の面側には空気流路2aが形成され、他方の面側には燃料ガス流路2bが形成されている。

【0055】実施例5。図9はこの発明の第5の発明に係る燃料電池用リブ付きセパレータの一実施例を示す図である。この実施例5のリブ付きセパレータ2は、実施例1の空気電極用ハーフセパレータ20Aと燃料ガス電極用ハーフセパレータ20Bとの互いの緻密質炭素層41側どうしを導電性を有する黒鉛入りの耐熱接着剤22（例えば英国サーモン社製のサーモセメント等）を介して接合して一体化したものである。なお、このリブ付きセパレータ2の厚さは、ハーフセパレータ20A、20Bの厚さがそれぞれ1.5mmであり、耐熱接着剤22の厚さが100μmであるため、3.1mmとなる。

【0056】この実施例5のリブ付きセパレータ2は実施例1の一対のハーフセパレータ20A、20Bを接合して一体化したものであるため、実施例1のリブ付きセパレータ2と同様な効果を得ることができるとともに、接合して一体化した分、実施例1のリブ付きセパレータ2より積層コストの低減を図ることができるとともに、強度の向上を図ることができる。

【0057】なお、この実施例5では耐熱接着剤22として英国サーモン社製のサーモセメントを使用しているが、これに限らず導電性機能を損なわず、耐熱性を有するものであればよいのは勿論である。

【0058】実施例6。図10はこの発明の第6の発明に係る燃料電池用リブ付きセパレータの製造方法の一実施例を示す図である。この実施例6は実施例5の接合形のリブ付きセパレータの製造方法に関するものである。

【0059】この製造方法は一面側にガス流路用のリブRを有する一定厚さの多孔質炭素板を製作する第1の工程C1と、前記多孔質炭素板の他面側に熱硬化性樹脂の薄膜を形成する第2の工程C2と、前記薄膜が形成された多孔質炭素板を加熱処理して、前記薄膜をシール性のある緻密質炭素層に変える第3の工程C3と、前記緻密質炭素層41が形成された一対の多孔質炭素板の前記緻密質炭素層側どうしを接合して一体化する第4の工程C4とから構成されている。

【0060】第1の工程C1から第3の工程C3までは実施例2の第1の工程A1から第3の工程A3までとそれぞれ同一であるため、その説明を省略する。第4の工程C4では、第3の工程C3までにおいてできあがった空気電極用ハーフセパレータ20Aと燃料ガス電極用ハーフセパレータ20Bとの互いの緻密質炭素層41側どうしの面を有機溶剤にて洗浄した後、この面に導電性を有する黒鉛入りの耐熱接着剤22を均一に塗布して、この塗布面どうしを合わせて2つのハーフセパレータ20A、20Bを互いに貼り合わせる。その後これらを、一



定の面圧を加えたまま80℃で2時間加熱後、250～300℃まで昇温して加熱処理し、この2つのハーフセパレータ20A、20Bを接合する。

【0061】以上の第1、第2、第3、第4の工程C1、C2、C3、C4によって、2つのハーフセパレータ20A、20Bを接合させたりブ付きセパレータ2が歩留りより低コストで製造される。

【0062】実施例7. 図11はこの発明の第7の発明に係る燃料電池用リブ付きセパレータの一実施例を示す図である。この実施例7のリブ付きセパレータ2は比較10 的緻密で強度のある薄い炭素板23（例えば日清紡株式会社製のアモルファスニューカーボンフィルム）を実施例1の空気電極用ハーフセパレータ20Aと燃料ガス電極用ハーフセパレータ20Bとの互いの緻密質炭素層41側で挟みつけ、耐熱接着剤22を介してこれらを接合して一体化したものである。なお、このリブ付きセパレータ2の厚さは、ハーフセパレータ20A、20Bの厚さがそれぞれ1.5mm、炭素板23の厚さが200μm、炭素板23の両面側の耐熱接着剤22の厚さがそれぞれ100μmであるため、3.4mmとなる。

【0063】この実施例7のリブ付きセパレータ2は3部材を接合して一体化したものであるが、炭素板23をハーフセパレータ20A、20Bで挟みつけたものであるため、曲げ強度が強く、かつ傾斜炭素板30から構成されるハーフセパレータ20A、20Bの特性上、電気抵抗および熱抵抗も、従来の同程度の厚さのリブ付きセパレータ2に比べて小さくなる。もちろん、積層コストの低減を図ることもできる。

【0064】なお、この実施例7では炭素板23として日清紡株式会社製のアモルファスニューカーボンフィルムを使用しているが、これに限らず高強度で緻密質であ10 ればたのものでもよい。

【0065】実施例8. 図12はこの発明の第8の発明に係る燃料電池用リブ付きセパレータの製造方法の一実施例を示す図である。この実施例8は実施例7の接合形のリブ付きセパレータの製造方法に関するものである。

【0066】この製造方法は一面側にガス流路用のリブRを有する一定厚さの多孔質炭素板を製作する第1の工程D1と、前記多孔質炭素板の他面側に熱硬化性樹脂の薄膜を形成する第2の工程D2と、前記薄膜が形成された多孔質炭素板を加熱処理して、前記薄膜をシール性のある緻密質炭素層に変える第3の工程D3と、薄い強度のある炭素板23を、前記緻密質炭素層が形成された一対の多孔質炭素板の緻密質炭素層側どうしで挟みつけて接合し、これらを一体化する第4の工程D4とから構成される。

【0067】第1の工程D1から第3の工程D3までは実施例2の第1の工程A1から第3の工程A3までとそれぞれ同一であるため、その説明を省略する。第4の工程D4では、第3の工程D3までにおいてできあがった

空気電極用ハーフセパレータ20Aと燃料ガス電極用ハーフセパレータ20Bとの互いの緻密質炭素層41側どうしの面、および薄くて強度のある炭素板23の両面を有機溶剤にて洗浄した後、これらの面に耐熱接着剤22を均一に塗布して、この塗布面どうしを合わせて2つのハーフセパレータ20A、20Bと炭素板23とを互いに貼り合わせる。その後、これらを、一定の面圧を加えたまま80℃で2時間加熱後、250～300℃まで昇温させて加熱処理し、この2つのハーフセパレータ20A、20Bを接合する。

【0068】以上の第1、第2、第3、第4の工程D1、D2、D3、D4によって、2つのハーフセパレータ20A、20Bの間に炭素板23を接合させたりブ付きセパレータ2が歩留りより低コストで製造される。

【0069】

【発明の効果】この発明は、以上のように構成されているので、以下に記載されるような効果を奏する。

【0070】この発明の第1の発明によれば、電解質を保持するマトリックスの両側に電極を有した単電池と交互に積層され、その両面にガス流路用のリブが形成されている燃料電池用リブ付きセパレータにおいて、その材料を、一定厚さの多孔質炭素層の一面側に薄くてシール性のある緻密質炭素層を有した一体形の傾斜炭素板2枚から構成し、そのガス流路用のリブを、2枚の多孔質炭素板の各多孔質炭素層の他面側に形成しているため、性能・品質を満たした状態でこのリブ付きセパレータの電気抵抗や熱抵抗を小さく抑えることができ、かつ積層コストの低減を図ることができる。

【0071】この発明の第2の発明によれば、は、電解質を保持するマトリックスの両側に電極を有した単電池と交互に積層され、その両面にガス流路用のリブが形成されている燃料電池用リブ付きセパレータの製造方法において、一面側にガス流路用のリブを有する一定厚さの多孔質炭素板を製作する第1の工程と、多孔質炭素板の他面側に熱硬化性樹脂の薄膜を形成する第2の工程と、薄膜が形成された多孔質炭素板を加熱処理して、薄膜をシール性のある緻密質炭素層に変える第3の工程とを有するため、第1の発明に係るリブ付きセパレータを歩留まりよく低コストで製造できる。

【0072】この発明の第3の発明によれば、電解質を保持するマトリックスの両側に電極を有した単電池と交互に積層され、その両面にガス流路用のリブが形成されている燃料電池用リブ付きセパレータにおいて、その材料を、一定厚さの一対の多孔質炭素層の間に薄くてシール性のある緻密質炭素層を有した一体形の傾斜炭素板から構成し、そのガス流路用のリブを、傾斜炭素板の多孔質炭素層の両外面側に形成しているため、このリブ付きセパレータでは第1の発明に係るリブ付きセパレータより電気抵抗や熱抵抗をさらに小さく抑えることができ、かつ積層コストのさらなる低減を図ることができる。

【0073】この発明の第4の発明によれば、電解質を保持するマトリックスの両側に電極を有した単電池と交互に積層され、その両面にガス流路用のリブが形成されている燃料電池用リブ付きセパレータの製造方法において、一面側にガス流路用のリブを有する一定厚さの多孔質炭素板を製作する第1の工程と、多孔質炭素板の他面側に熱硬化性樹脂の薄膜を形成する第2の工程と、薄膜が形成された一対の多孔質炭素板の薄膜側どうしを重ね合わせ、加熱処理して、これらを一体化するとともに、薄膜をシール性のある緻密質炭素層に変える第3の工程とを有するため、第3の発明に係るリブ付きセパレータを歩留まりよく、かつ、低コストで製造できる。

【0074】この発明の第5の発明によれば、電解質を保持するマトリックスの両側に電極を有した単電池と交互に積層され、その両面にガス流路用のリブが形成されている燃料電池用リブ付きセパレータにおいて、その材料を、一定厚さの多孔質炭素層の一面側に薄くてシール性のある緻密質炭素層を有した一体形の傾斜炭素板2枚から構成し、そのガス流量用のリブを、緻密質炭素層側どうしを接合して一体化した2枚の傾斜炭素板の多孔質炭素層の両外面側に形成しているため、このリブ付きセパレータでは第1の発明に係るリブ付きセパレータと同一の効果を有することができるとともに、この第1の発明に係るリブ付きセパレータより積層コストの低減を図ることができる。

【0075】この発明の第6の発明によれば、電解質を保持するマトリックスの両側に電極を有した単電池と交互に積層され、その両面にガス流路用のリブが形成されている燃料電池用リブ付きセパレータの製造方法において、一面側にガス流路用のリブを有する一定厚さの多孔質炭素板を製作する第1の工程と、多孔質炭素板の他面側に熱硬化性樹脂の薄膜を形成する第2の工程と、薄膜が形成された多孔質炭素板を加熱処理して、薄膜をシール性のある緻密質炭素層に変える第3の工程と、緻密質炭素層が形成された2枚の多孔質炭素板の緻密質炭素層側どうしを接合して一体化する第4の工程とを有するため、第5の発明に係るリブ付きセパレータを歩留まりよく、かつ、低コストで製造できる。

【0076】この発明の第7の発明によれば、電解質を保持するマトリックスの両側に電極を有した単電池と交互に積層され、その両面にガス流路用のリブが形成されている燃料電池用リブ付きセパレータにおいて、その材料を、一定厚さの多孔質炭素層の一面側に薄くてシール性のある緻密質炭素層を有した一体形の傾斜炭素板2枚と、薄い強度のある炭素板とから構成し、そのガス流量用リブを、炭素板を2枚の傾斜炭素板の緻密質炭素層側どうしで挟みつけて合体接合したものの多孔質炭素層側両外面に形成しているため、リブ付きセパレータの単体の強度を上げることができ、かつ積層コストの低減を図ることができる。

【0077】この発明の第8の発明によれば、電解質を保持するマトリックスの両側に電極を有した単電池と交互に積層され、その両面にガス流路用のリブが形成されている燃料電池用リブ付きセパレータの製造方法において、一面側にガス流路用のリブを有する一定厚さの多孔質炭素板を製作する第1の工程と、多孔質炭素板の他面側に熱硬化性樹脂の薄膜を形成する第2の工程と、薄膜が形成された多孔質炭素板を加熱処理して、薄膜をシール性のある緻密質炭素層に変える第3の工程と、薄い強度のある炭素板を緻密質炭素層が形成された2枚の多孔質炭素板の緻密質炭素層側どうしで挟みつけて接合し、これらを一体化する第4の工程とを有するため、第7の発明に係るリブ付きセパレータを歩留まりよく、かつ、低コストで製造できる。

【図面の簡単な説明】

【図1】この発明の実施例1に関する積層式リン酸形燃料電池の積層体の部分的斜視図である。

【図2】この発明の実施例1に関するリブ付きセパレータの断面図である。

【図3】この発明の実施例1に関する傾斜炭素板の断面図である。

【図4】この発明の実施例2に関するリブ付きセパレータの製造工程を示す工程フロー図である。

【図5】この発明の実施例3に関する積層式リン酸形燃料電池の積層体の部分的斜視図である。

【図6】この発明の実施例3に関するリブ付きセパレータの断面図である。

【図7】この発明の実施例3に関する傾斜炭素板の断面図である。

【図8】この発明の実施例4に関するリブ付きセパレータの製造工程を示す工程フロー図である。

【図9】この発明の実施例5に関するリブ付きセパレータの断面図である。

【図10】この発明の実施例6に関するリブ付きセパレータの製造工程を示す工程フロー図である。

【図11】この発明の実施例7に関するリブ付きセパレータの断面図である。

【図12】この発明の実施例8に関するリブ付きセパレータの製造工程を示す工程フロー図である。

【図13】従来の積層式リン酸形燃料電池の積層体の斜視図である。

【図14】従来のリブ付きセパレータの断面図である

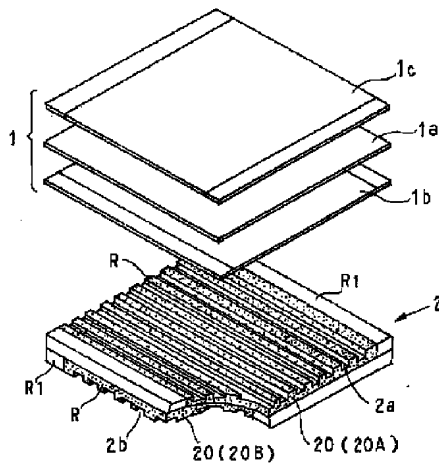
【符号の説明】

- 1 単電池
- 1 a マトリックス
- 1 b 空気電極（電極）
- 1 c 燃料電極（電極）
- 2 リブ付きセパレータ
- 2 a 空気流路（ガス流路）
- 2 b 燃料ガス流路（ガス流路）

23 炭素板  
30 傾斜炭素板  
31 傾斜炭素板  
40 多孔質炭素層  
41 緻密質炭素層  
42 緻密質炭素層  
A1 第1の工程  
A2 第2の工程  
A3 第3の工程  
B1 第1の工程  
B2 第2の工程

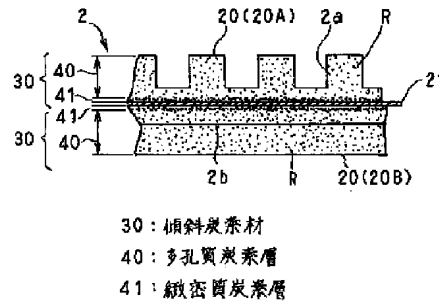
B3 第3の工程  
C1 第1の工程  
C2 第2の工程  
C3 第3の工程  
C4 第4の工程  
D1 第1の工程  
D2 第2の工程  
D3 第3の工程  
D4 第4の工程  
10 R リブ

【図1】

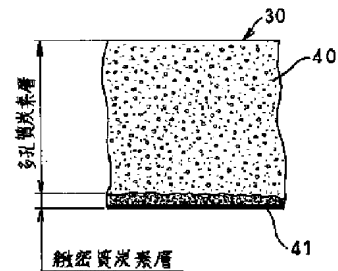


1 : 単電池  
1a : マトリックス  
1b : 空気電極 (電極)  
1c : 燃料電極 (電極)  
2 : リブ付シセパレータ  
2a : 空気流路 (ガス流路)  
2b : 燃料ガス流路 (ガス流路)  
R : リブ

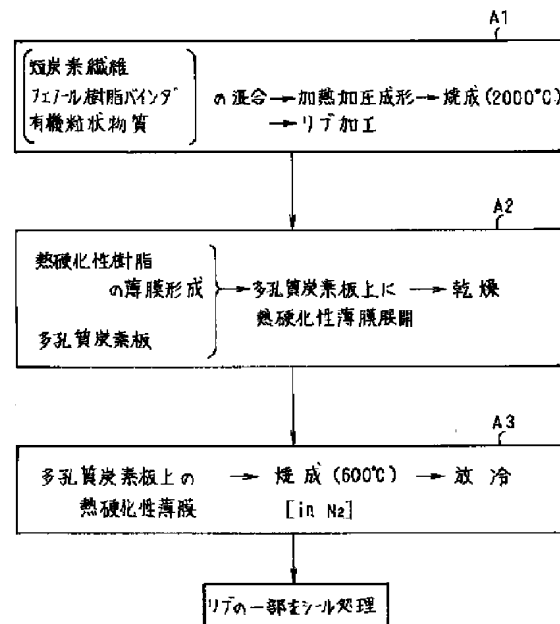
【図2】



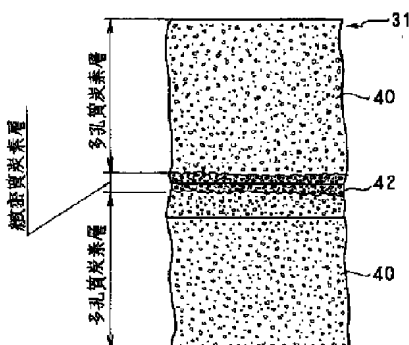
【図3】



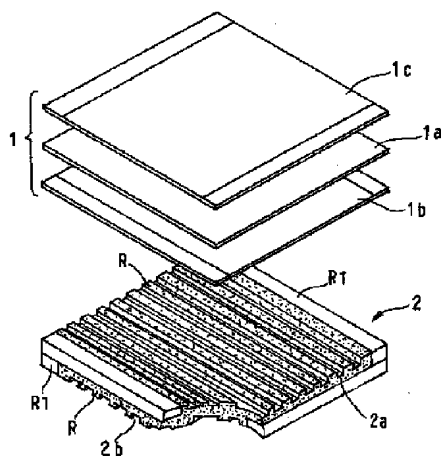
【図4】



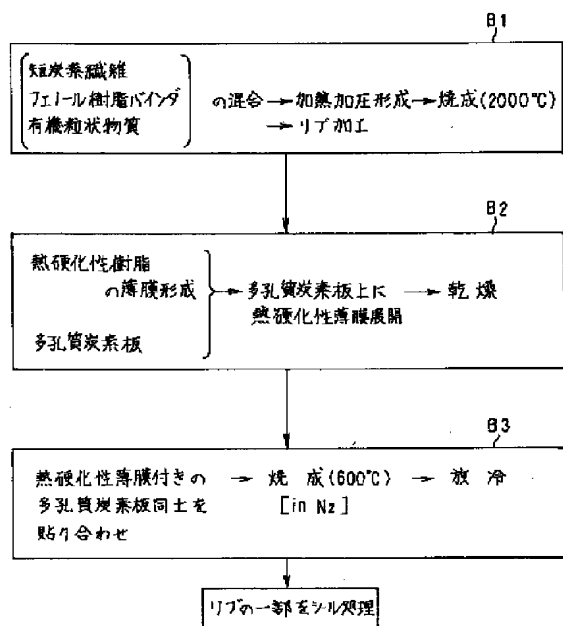
【図7】



【図5】

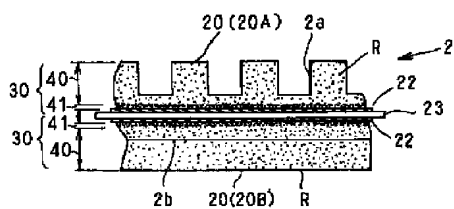


【図8】

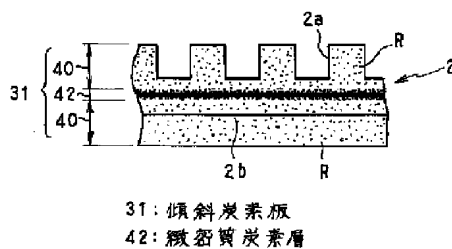


B1: 第1の工程  
B2: 第2の工程  
B3: 第3の工程

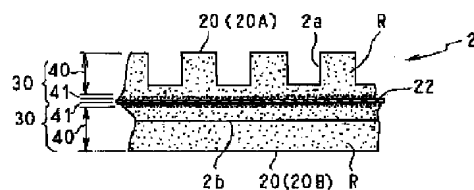
【図11】



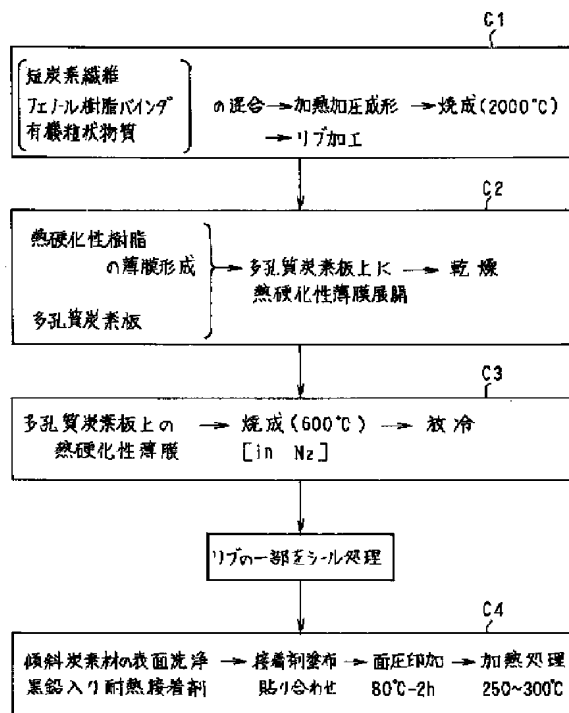
【図6】



【図9】

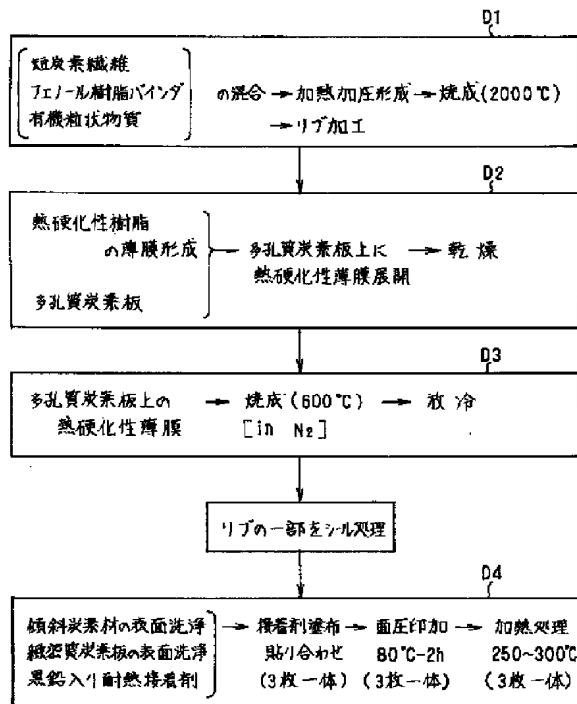


【図10】



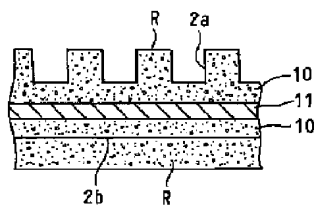
C1: 第1の工程  
C2: 第2の工程  
C3: 第3の工程  
C4: 第4の工程

【図12】

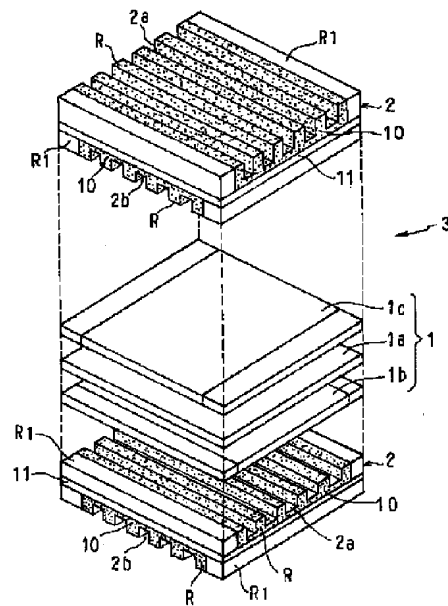


D1: 第1の工程  
D2: 第2の工程  
D3: 第3の工程  
D4: 第4の工程

【図14】



【図13】



## 【手続補正書】

【提出日】平成5年5月19日

## 【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項5

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項5】 電解質を保持するマトリックスの両側に電極を有した単電池と交互に積層され、その両面にガス流路用のリブが形成されている燃料電池用リブ付きセパ

レータにおいて、その材料を、一定厚さの多孔質炭素層の一面側に薄くてシール性のある緻密質炭素層を有した一体形の傾斜炭素板2枚から構成し、そのガス流路用のリブを、前記緻密質炭素層側どうしを接合して一体化した前記2枚の傾斜炭素板の前記多孔質炭素層の両外面側に形成していることを特徴とする燃料電池用リブ付きセパレータ。

【手続補正2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項7

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項7】 電解質を保持するマトリックスの両側に電極を有した単電池と交互に積層され、その両面にガス流路用のリブが形成されている燃料電池用リブ付きセパレータにおいて、その材料を、一定厚さの多孔質炭素層の一面側に薄くてシール性のある緻密質炭素層を有した一体形の傾斜炭素板2枚と、薄い強度のある炭素板とから構成し、そのガス流路用リブを、前記炭素板を前記2枚の傾斜炭素板の緻密質炭素層側どうしで挟みつけて合体接合したものの多孔質炭素層側両外面に形成していることを特徴とする燃料電池用リブ付きセパレータ。

【手続補正3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0008

【補正方法】変更

【補正内容】

【0008】ここで、多孔質炭素板10と緻密質炭素板11とを接合または一体化する方法には、  
A：それぞれ焼成が終了したものに接合剤を塗布し、その後これ等を加圧・加熱処理して貼り合わせる接合方法と、  
B：それぞれ焼成が終了したものに熱硬化性樹脂を塗布して貼り合わせた後、これ等を加圧・焼成する一体化方法と、  
C：一方または双方が未焼成（いわゆるグリーン状態をいう）のものどうしを加圧して貼り合わせた後、これ等を焼成する一体化方法とがある。  
しかし、実際には多孔質炭素板10と緻密質炭素板11間には線膨張率や弾性定数および収縮度に違いがあるため、BおよびCの一体化方法は困難であり、Aの接合方法が多く採用されている。

【手続補正4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0009

【補正方法】変更

【補正内容】

【0009】上記Aの方法では接合剤として耐リン酸性を兼ね備えた材料という観点から、フッ素樹脂系またはこれと炭素材料の混合材等が使用される。そして、この接合剤を緻密質炭素板11の表面に薄く塗布して乾燥した後、この緻密質炭素板11を2枚の多孔質炭素板10、10で挟んで加圧し、これ等を300～400℃まで昇温して、接合体としてのリブ付きセパレータ2が製作される。なお、片溝形のリブ付きセパレータは1枚の多孔質炭素板10と1枚の緻密質炭素板11とを同様にして接合すればよい。

【手続補正5】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0011

【補正方法】変更

【補正内容】

【0011】また、多孔質炭素板10や緻密質炭素板11を別々に積層していく場合には、積層体3の面圧分布やクリープ変形による面圧緩和に対応して、局所的な接触部分に大きな電気抵抗や熱抵抗が生じやすく、電池寿命を短くしてしまうという課題がある。

【手続補正6】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0020

【補正方法】変更

【補正内容】

【0020】この発明の第5の発明は、電解質を保持するマトリックスの両側に電極を有した単電池と交互に積層され、その両面にガス流路用のリブが形成されている燃料電池用リブ付きセパレータにおいて、その材料を、一定厚さの多孔質炭素層の一面側に薄くてシール性のある緻密質炭素層を有した一体形の傾斜炭素板2枚から構成し、そのガス流路用のリブを、緻密質炭素層側どうしを接合して一体化した2枚の傾斜炭素板の多孔質炭素層の両外面側に形成していることである。

【手続補正7】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0022

【補正方法】変更

【補正内容】

【0022】この発明の第7の発明は、電解質を保持するマトリックスの両側に電極を有した単電池と交互に積層され、その両面にガス流路用のリブが形成されている燃料電池用リブ付きセパレータにおいて、その材料を、一定厚さの多孔質炭素層の一面側に薄くてシール性のある緻密質炭素層を有した一体形の傾斜炭素板2枚と、薄い強度のある炭素板とから構成し、そのガス流路用リブを、炭素板を2枚の傾斜炭素板の緻密質炭素層側どうしで挟みつけて合体接合した多孔質炭素層側両外面に形成していることである。

【手続補正8】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0045

【補正方法】変更

【補正内容】

【0045】従来技術では、緻密質炭素材を製造するにあたり、特に焼成時の収縮率が大きく、かつその緻密性を確保するには板厚を一定厚さ（0.4～1.0mm）まで厚肉化しなければならなかった。そのため、従来は緻密質炭素層を第3の工程A3のような方法で焼成済みの多孔質炭素材（1.5mm）の一侧に形成するのは、緻密質層が厚くなり割れが発生するため、困難であった。いっぽう、例えばポリカルボジイミド樹脂は非常に

薄肉（200 $\mu$ m以下）に成形できるとともに、その焼成時の収縮率が小さく、かつその焼成温度が600℃と比較的低いため、第3の工程A3により割れを生じることなく緻密質炭素層が形成できると考えられる。

【手続補正9】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0074

【補正方法】変更

【補正内容】

【0074】この発明の第5の発明によれば、電解質を保持するマトリックスの両側に電極を有した単電池と交互に積層され、その両面にガス流路用のリブが形成されている燃料電池用リブ付きセパレータにおいて、その材料を、一定厚さの多孔質炭素層の一面側に薄くてシール性のある緻密質炭素層を有した一体形の傾斜炭素板2枚から構成し、そのガス流路用のリブを、緻密質炭素層側どうしを接合して一体化した2枚の傾斜炭素板の多孔質炭素層の両外面側に形成しているため、このリブ付きセパレータでは第1の発明に係るリブ付きセパレータと同一の効果を有することができるとともに、この第1の発

明に係るリブ付きセパレータより積層コストの低減を図ることができる。

【手続補正10】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0076

【補正方法】変更

【補正内容】

【0076】この発明の第7の発明によれば、電解質を保持するマトリックスの両側に電極を有した単電池と交互に積層され、その両面にガス流路用のリブが形成されている燃料電池用リブ付きセパレータにおいて、その材料を、一定厚さの多孔質炭素層の一面側に薄くてシール性のある緻密質炭素層を有した一体形の傾斜炭素板2枚と、薄い強度のある炭素板とから構成し、そのガス流路用リブを、炭素板を2枚の傾斜炭素板の緻密質炭素層側どうしで挟みつけて合体接合したものの多孔質炭素層側両外面に形成しているため、リブ付きセパレータの単体の強度を上げることができ、かつ積層コストの低減を図ることができる。